

## Nd-Fe-B系燃結磁石の着磁特性に関する研究

著者	洪 連 基
号	1840
発行年	1995
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/7113">http://hdl.handle.net/10097/7113</a>

氏 名	Hong 連 基
授 与 学 位	博 士 ( 工 学 )
学 位 授 与 年 月 日	平 成 8 年 3 月 26 日
学 位 授 与 の 根 拠 法 規	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項
研 究 科 , 専 攻 の 名 称	東北大学大学院工学研究科 ( 博士課程 ) 材料物性学専攻
学 位 論 文 題 目	Nd-Fe-B系焼結磁石の着磁特性に関する研究
指 導 教 官	東北大学教授 本 間 基 文
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 本 間 基 文      東北大学教授 岡 田 益 男 東北大学教授 藤 森 啓 安

## 論 文 内 容 要 旨

### 第 1 章 緒 論

1983年佐川らにより開発された Nd-Fe-B 系焼結磁石は高い最大エネルギー積  $(BH)_{\max}$  が得られている。Nd-Fe-B 系焼結磁石において磁性を担うのは、 $Nd_2Fe_{14}B$  化合物で、飽和磁化1.6T、異方性磁界5.84MAm<sup>-1</sup> (73kOe) と高い磁気的性質を有する。現在この系の  $(BH)_{\max}$  は実験室レベルでは431kJm<sup>-3</sup> (54.2MGOe) に達している。

一方、図1から知られるように本系焼結磁石において初磁化曲線の立ち上がりはほぼ飽和に達していると見えるが低い着磁磁界では保磁力は低く本来の磁気特性が得られない。低い磁界で本来の磁気特性が得られること、すなわち着磁特性の向上は小型磁石における多極着磁および磁石を他の部品と組み立てた後行う組立着磁にとって重要であり、着磁特性の向上は本系焼結磁石にとって検討すべき重要な課題であると考えられる。しかし、着磁特性に関する研究は少なく、系統的な研究は十分に検討されていない。

よって本研究では Nd-Fe-B 系焼結磁石の着磁特性に影響を及ぼすと考えられる磁性相粒子の配向度、非磁性相量、熱処理、添加元素および高温着磁について着磁特性への影響を検討した。

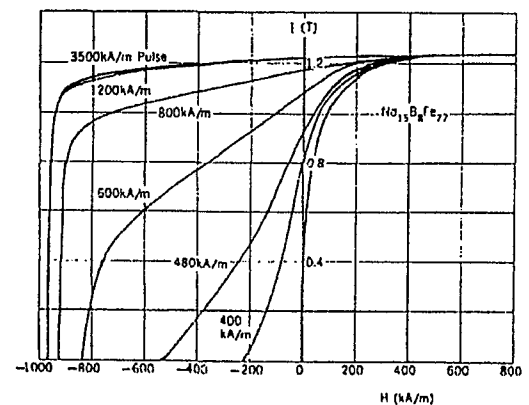


図1 Nd<sub>15</sub>Fe<sub>77</sub>Be焼結磁石の着磁磁界による減磁曲線の変化 (佐川らによる)

### 第 2 章 磁性相粒子の配向と着磁特性

単一合金を用いた従来の作製法と優れた配向度を持つ焼結磁石が得られると報告されている粉末混合法により焼結磁石を作製し、磁性相粒子の配向度が着磁特性に及ぼす影響について検討した。

#### a) 単一合金を用いた焼結磁石の着磁特性

結晶磁気異方性を利用した Nd-Fe-B 系焼結磁石などの異方性焼結磁石の場合、高い磁気特性を得るには、磁界中圧縮成形によって磁性相粒子の磁化容易軸を揃えることが必要となる。本研究では試料作製時、配向磁界を変え磁性相粒子の配向度が着磁特性に及ぼす影響について検討し、磁界中圧縮成形における印加磁界が 0MAm<sup>-1</sup> (0kOe) の等方性試料に比較して、印加磁界を加えた異方性試料では、高い着磁特性を示すことを見出した。

## b) 粉末混合法を用いた焼結磁石の着磁特性

磁性相粒子のより高い配向度を得るために本研究では粉末混合法を用いて焼結磁石を作製した。すなわち  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相が単相であるインゴットと液相組成のインゴットを別途に粉碎し、それらを混合して焼結を行った。液相組成合金は粉碎し難く酸化しやすいため、本研究ではその粉碎法として Harris らにより報告されている HD (Hydrogen Decrepitation) 現象、つまり合金の水素吸蔵による微分化現象を用いて試料を作製し、得られた試料を用いて磁性相粒子の配向度の着磁特性に及ぼす影響について検討した。その結果を図 2 に示す。着磁に要する磁界は磁化容易軸と着磁磁界とのなす角度に依存し、同じ着磁特性を得るための磁界は角度の増大に伴ってほぼ  $1/\cos\theta$  で増加し、磁化エネルギーの変化に対応していると考えられる。また、等方性試料の着磁特性は異方性試料に比較して低く、所定の相対磁気特性を得るにはほぼ 2 倍の着磁磁界が必要である。

## 第 3 章 非磁性相量と着磁特性

本系焼結磁石は液相焼結によって作製され、合金組成は  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  化合物より Nd-rich となっている。従って非磁性相量が増大すると試料内部の反磁界が増大し、着磁特性の低下が予想される。本章では  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{94.0-x}\text{B}_{6.0}$  ( $x=13.9\sim 20.9\text{at}\%$ ) 焼結磁石を作製し非磁性相量にともなう反磁界による着磁特性について検討した。図 3 に示すように 14.4at%Nd 組成合金では約  $0.8\text{MAm}^{-1}$  での着磁磁界で相対  $(\text{BH})_{\text{max}}$  が 60% に達するが 20.9at%Nd 組成合金では約 35% と低くなり、60% の着磁特性を得るには  $1.0\text{MAm}^{-1}$  以上の磁界が必要となる。これは Nd 量の増加によって非磁性の Nd-rich 相が増加したためであると考えられる。本実験で用いられた 14.4at%Nd 組成および 20.9at%Nd 組成焼結磁石の  $20\text{MAm}^{-1}$  の磁界での減磁曲線から求められたマクロ的反磁界は  $0.03\text{MAm}^{-1}$  と  $0.27\text{MAm}^{-1}$  になり Nd 量の増加にともなう着磁磁界の増加は非磁性相によるマクロ的反磁界の増加が主な原因であると考えられる。

## 第 4 章 熱処理および添加元素と着磁特性

焼結磁石の磁気履歴曲線の初磁化曲線からみると約  $0.4\text{MAm}^{-1}$  の着磁磁界ではほぼ飽和に達している。しかし、その減磁曲線の保磁力は低い。これはマクロ的には飽和されていると考えられる磁界でも着磁が不十分であることを意味する。

その原因としては第 2 章と第 3 章で述べた磁性相粒子の配向や非磁性相による反磁界以外に磁性相粒子による局所的な反磁界が作用していることが考えられる。本章では、局所的な反磁界は磁性相粒子の凹凸等の形状等の組織に影響されると考えられるので、焼結磁石の作製における焼結条件および焼結後の冷却条件などの熱処理条件および添加元素の着磁特性に及ぼす影響について検討した。

その結果、粒径の低下、焼結条件を変えても着磁特性における相対  $(\text{BH})_{\text{max}}$  には有為な差が認められなかった。図 4 の  $H_c$ ,  $H_A$  および  $I_s$  の温度変化から見積もられた局所的な反磁界係数  $N_{\text{eff}}$  は良好な磁気特性を示し本研究の標準試料で

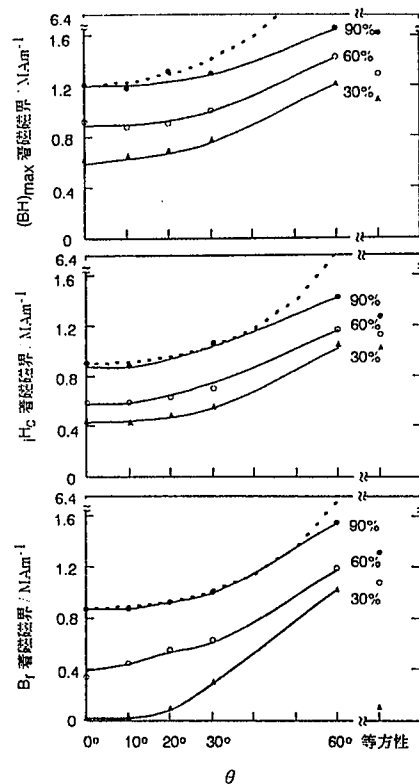


図 2  $\text{Nd}_{14.4}\text{Fe}_{78.8}\text{B}_{6.0}$  焼結磁石の角度の変化による 30, 60, 90% の着磁に要する着磁磁界 ( $\cdots 1/\cos\theta$ )

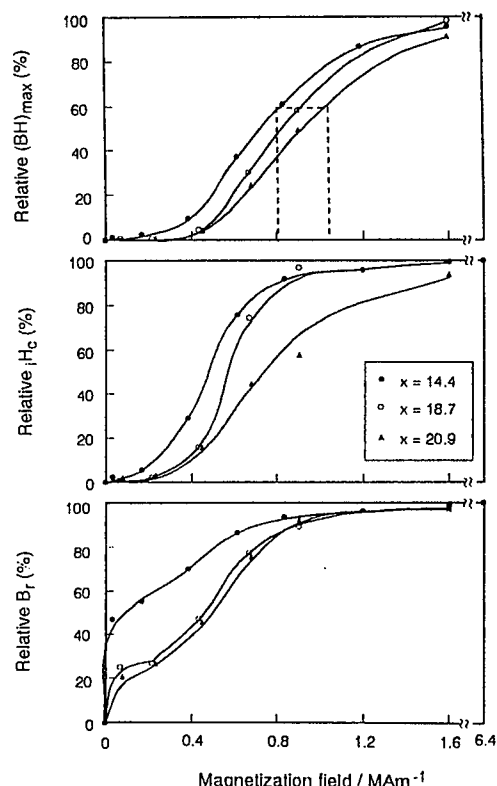


図 3  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{94.0-x}\text{B}_{6.0}$  ( $x=14.4, 18.7, 20.9\text{at}\%$ ) 焼結磁石の着磁磁界と相対磁気特性

ある  $\text{Nd}_{14.4}\text{Fe}_{79.6}\text{B}_{6.0}$  磁石は約0.64で、局所的反磁界は  $0.82\text{MAm}^{-1}$  (1.0T) となり、90%以上の相対保磁力を得るための  $0.84\text{MAm}^{-1}$  程度の着磁磁界と同等の局所的反磁界が働いていると考えられる。

本系統結磁石が高い保磁力を得るために組成を化学量論組成から Nd 側にずらしている以上、非磁性相が存在する。その非磁性相の存在によって局所的反磁界の発生が考えられる。よって、着磁特性の向上には非磁性相量を極力低減することが必要と考えられる。

## 第5章 高温着磁

本系統結磁石において局所的反磁界が着磁特性を著しく左右していることを第4章で述べた。反磁界は磁性相の自発磁化によって生じるものであるから、昇温による自発磁化の減少が着磁特性に影響を与えるものと考えられる。本章では昇温による自発磁化の低下に着目して、高温から磁界中冷却を行って着磁特性への影響を調べた。

図5に磁界中冷却の磁界を0, 4, 6  $\text{MAm}^{-1}$ 、開始温度をキュリー温度以上の623Kとキュリー温度以下の500Kおよび550Kとした場合の着磁磁界と相対磁気特性の関係を示した。キュリー温度以上から磁界中冷却した場合、未処理試料と比べて  $0.4\text{MAm}^{-1}$  の磁界中冷却により相対  $(BH)_{\max}$  が10%から60%に向上している。これは未処理試料の着磁磁界  $0.8\text{MAm}^{-1}$  における値と同程度である。500K および 550K からの磁界中冷却を開始した試料と比較して、キュリー温度以上から開始した試料では着磁特性が向上している。  $0.4\text{MAm}^{-1}$  磁界中冷却では自己エネルギーが磁化エネルギーより小さくなる温度は570K以上である。したがって500K および 550K からの磁界中冷却ではその効果が低下すると考えられる。

## 第6章 総括

本章は総括であり、第2章から第5章までに得た結果についてまとめたものである。すなわち第2章においては着磁に要する磁界は磁化容易軸と着磁磁界とのなす角度に依存し、同じ着磁特性を得るための磁界は角度の増大に伴ってほぼ  $1/\cos\theta$  で増加し、磁化エネルギーの変化に対応していることを見出している。第3章ではNd量の増加にともなう着磁磁界の増加は非磁性相によるマクロ的反磁界の増加が主な原因であることを指摘している。第4章では局所的反磁界が最も着磁特性を低下させる要因であることを示し、第5章では昇温による自発磁化の減少は反磁界の減少を伴うことに着目し磁界中冷却による着磁特性の向上について指摘した。

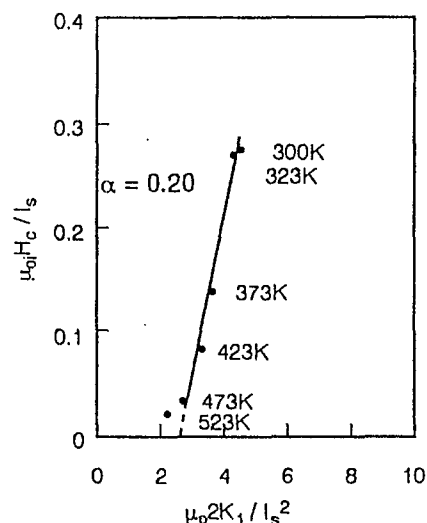


図4  $\text{Nd}_{14.4}\text{Fe}_{79.6}\text{B}_{6.0}$  焼結磁石の  $\mu_0 H_c / I_s$  と  $\mu_0 2K_i / I_s^2$  の関係

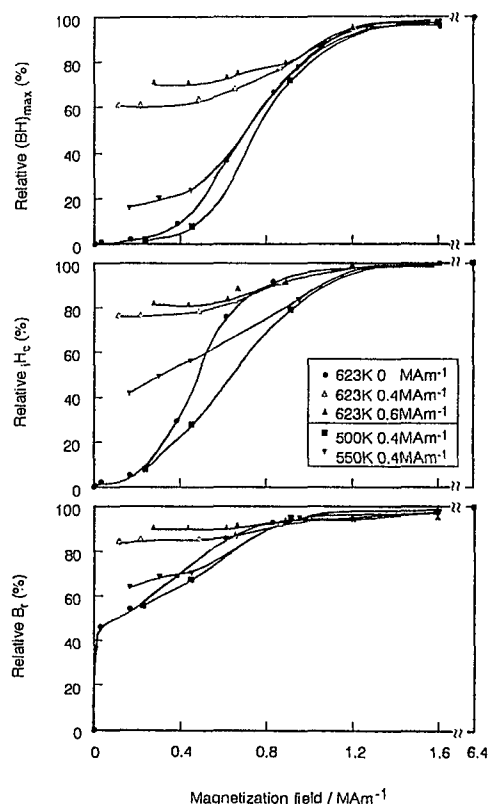


図5  $\text{Nd}_{14.4}\text{Fe}_{79.6}\text{B}_{6.0}$  焼結磁石の着磁特性に及ぼす磁界中冷却の磁界および冷却開始温度の影響

## 審 査 結 果 の 要 旨

Nd-Fe-B 系焼結磁石は最大エネルギー積  $(BH)_{\max}$  が最も高く、応用機器の小型化・高性能化にとって主要な永久磁石材料である。しかし、着磁によって90%程度の  $(BH)_{\max}$  を得るのに1.2MA/m以上の高磁界が必要であり、高磁界の印加が困難な小形多極磁石および組立後着磁などでは、着磁特性の向上による着磁磁界の低減が要望されているが、期待される成果は得られていない。本論文は、Nd-Fe-B 系焼結磁石の着磁特性におよぼす  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  磁性相粒子の配向度、非磁性相の量、焼結における熱処理条件および Cr, W 添加の影響を検討するとともに、高温着磁を試みた研究の経緯をまとめたものであり、全編6章よりなる。

第1章は緒論である。

第2章では、磁性相粒子の配向度と着磁特性の関係を検討している。配向度の低下によって着磁特性は低下する。その変化は磁性相の磁化容易軸と着磁磁界の方向との角度による磁化エネルギーの変化に対応することを明らかにしている。

第3章では、本系焼結磁石の組織に混在する非磁性相の量と着磁特性との関係を検討している。非磁性相量の増加に伴って着磁特性は低下する。その低下は減磁曲線の保磁力近傍の勾配から求められるマクロ的反磁界の増加に対応することを示し、標準組成の焼結磁石では、マクロ的反磁界は0.03MA/m 程度であって、その影響が小さいことを明らかにしている。

第4章では、焼結工程の焼結温度、時間、冷却速度等の熱処理条件および Cr, W 添加による組織変化と着磁特性の関係を検討し、前章までの結果と総合して、着磁特性を低下させる最大の要因が磁性相粒子界面に作用する局所的反磁界であると考察している。

第5章では、マクロ的および局所的な反磁界の発生源である磁性相の自発磁化が温度上昇に伴って低下することに着目して、高温から磁界中冷却する高温着磁を検討している。0.4MA/m の磁界で、キュリー温度以上から高温着磁することによって、室温着磁の6倍に相当する60%の  $(BH)_{\max}$  が得られることを示すと同時に、反磁界による自己エネルギーが磁化エネルギーよりも低くなる温度以上から磁界中冷却することによって、高温着磁の効果が発生すると考察している。

第6章は総括である。

以上要するに、本論文は Nd-Fe-B 系焼結磁石の着磁特性を左右する諸因子に関する知見を得るとともに、高温着磁によって着磁特性が向上することを見出したもので、材料物性学の発展に寄与するところ少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。